

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

009452758 \*\*Image available\*\*

WPI Acc No: 1993-146283/ 199318

Related WPI Acc No: 1993-056071

XRAM Acc No: C93-065208

XRPX Acc No: N93-111796

Organic thin film electroluminescent element - consists of thin film comprising organic charge carrier transport material and EL material held between transparent electrodes

Patent Assignee: NEC CORP (NIDE )

Number of Countries: 001 Number of Patents: 002

Patent Family:

Patent No	Kind	Date	Applicat No	Kind	Date	Week
JP 5078655	A	19930330	JP 90340900	A	19901130	199318 B
JP 3005909	B2	20000207	JP 90340900	A	19901130	200012

Priority Applications (No Type Date): JP 90306556 A 19901113; JP 89318797 A 19891211; JP 89331066 A 19891222; JP 90160117 A 19900619; JP 90279183 A 19901019

Patent Details:

Patent No	Kind	Lan	Pg	Main IPC	Filing Notes
JP 5078655	A		13	C09K-011/06	
JP 3005909	B2		11	H05B-033/14	Previous Publ. patent JP 5078655

Abstract (Basic): JP 5078655 A

Organic thin film electroluminescent element consists of pair of electrodes at least one of which is transparent, and thin film held between two electrodes of organic electroluminescent material (A) which is mixt. of organic charge carrier transport material (A1) and organic electroluminescent material (A2).

(A2) may be selected from the gps. of pyrane derivs. of formula (I), coumarine derivs. or their salts or formula (II), cyanine type cpds. of formula (III), xanthene cpds. of formula (IV) or (V).

In formula (I), X = O or S, R<sub>1</sub> = opt. 2-(4-substd.)aminostyryl or 2-(9-durorydiyl)ethynyl, aryl, R<sub>2</sub> = alkyl, aryl or 2-(9-durorydiyl)ethynyl. In formula (II), R<sub>3</sub> = H, carboxyl, alkoxy, alkoxycarbonyl, alkanoyl, cyano, aryl, heterocyclic aromatic cpd. gp., R<sub>4</sub> = H, alkyl, haloalkyl, carboxyl, alkanoyl, alkoxycarbonyl, R<sub>5</sub> = HG or alkyl, R<sub>6</sub> = opt. substd. amino gp., R<sub>7</sub> = H or may form a condensed ring with amino gp. contg. R<sub>6</sub>, R<sub>3</sub> and R<sub>4</sub> may form a condensed carbon ring. In formula (III), R<sub>1</sub> = H alkyl or halogen, two may make a neopentylene gp. R<sub>2</sub> and R<sub>3</sub> denote heterocyclic cpd. residue contg. at least nitrogen atom and nitrogen atom in either R<sub>2</sub> or R<sub>3</sub> has positive charge. In formulas (IV) and (V), R<sub>11</sub>-R<sub>17</sub> (are each) = H, alkyl, aryl, substd. alkyl, substd. aryl, allyl, alkoxy, hydroxyl, alkoxycarbonyl, carbonyl, sulphonyl, nitro or halogen, R<sub>21</sub>-R<sub>31</sub> (are each) = H, alkyl, aryl, substd. alkyl, substd. aryl, allyl, alkoxy, hydroxyl, alkoxycarbonyl, carboxyl, sulphonyl, nitro or halogen.

(A) may be selected from the gps. of tert diamine cpds. of formula (IX), phthalocyanine type cpds. of formula (X) or (XI). In formula (XI), R<sub>1</sub>-R<sub>4</sub> (ar each) = H, alkyl, aryl, substd. alkyl or substd. aryl, R<sub>5</sub> = alkylene. In formula (X) or (XI), R<sub>1</sub>-R<sub>6</sub> (are each) = H, hydroxyl, phenyl, alkyl or sulphonic acid salt, R<sub>17</sub>-R<sub>32</sub> (ar each) = H, phenyl, alkyl or sulphonic acid salt.

USE/ADVANTAGE - The thin film organic electroluminescent element gives full-colour elements from blue to red at low voltage. It is suitable for mfg. flat illuminants and displays.

Dwg.0/5

Title Terms: ORGANIC; THIN; FILM; ELECTROLUMINESCENT; ELEMENT; CONSIST; THIN; FILM; COMPRISE; ORGANIC; CHARGE; CARRY; TRANSPORT; MATERIAL; ELECTROLUMINESCENT; MATERIAL; HELD; TRANSPARENT; ELECTRODE

Derwent Class: E13; L03; U11; U14

International Patent Class (Main): C09K-011/06; H05B-033/14

International Patent Class (Additional): H05B-033/14

File Segment: CPI; EPI

Manual Codes (CPI/A-N): E06-D01; E06-D02; E06-D13; E06-E01; E06-F01;  
E06-F05; E24-A; L03-H04A

Manual Codes (EPI/S-X): U11-A15; U14-H01A; U14-J02

Chemical Fragment Codes (M3):

\*07\* G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029 G040 G100  
G111 G112 G113 G221 G299 H1 H100 H101 H102 H103 H141 H142 H181 H182  
L640 M121 M122 M124 M129 M143 M149 M210 M211 M212 M213 M214 M215  
M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M273 M280  
M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315 M316 M321 M331 M332 M333  
M340 M342 M383 M391 M414 M416 M510 M520 M530 M531 M532 M533 M540  
M620 M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5507-M  
\*08\* A960 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 D000 D011 D012 D013  
D014 D015 D019 E350 G010 G019 G100 H401 H402 H403 H404 H405 H421  
H422 H423 H424 K431 K499 M113 M119 M210 M211 M212 M213 M214 M215  
M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M280  
M281 M282 M283 M411 M412 M417 M511 M520 M530 M531 M532 M533 M540  
M630 M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5508-M 9318-B5509-M  
\*09\* A960 C710 C801 C802 C803 C804 C805 C806 C807 D012 D021 D023 D024  
D621 H4 H401 H441 H494 H521 H541 H542 H608 H609 H621 H641 H642 L941  
M210 M211 M212 M213 M214 M215 M220 M221 M222 M223 M224 M225  
M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281 M282 M283 M320 M411 M417  
M511 M520 M530 M540 M630 M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5510-M  
\*10\* D013 D014 D021 D029 E160 G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020  
G021 G022 G029 G040 G100 G111 G112 G221 G299 H100 H101 H102 H103  
H141 H142 H211 H541 H542 J011 J012 J013 J341 J342 J371 J5 J522 K620  
K640 K850 L9 M112 M114 M119 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220  
M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M262 M272 M273  
M280 M281 M282 M283 M320 M412 M511 M520 M530 M531 M532 M533 M540  
M782 M903 M904 Q454 R043 9318-B5511-M 03531  
\*11\* G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029 G040 G100  
G111 G112 G113 G221 G299 H1 H103 H141 H7 H721 M1 M121 M122 M124 M129  
M132 M133 M143 M150 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221  
M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M273 M280 M281 M282 M312  
M321 M332 M342 M343 M414 M510 M520 M530 M531 M532 M533 M540 M782 M903 M904  
Q454 R043 9318-B5512-M 03531  
\*12\* D010 D020 D040 G001 G010 G011 G012 G013 G019 G100 H1 H103 H141 H7  
H721 M1 M121 M123 M129 M133 M143 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216  
M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M273 M280 M281  
M282 M312 M321 M332 M342 M412 M511 M520 M531 M532 M533 M540 M782  
M903 M904 Q454 R043 9318-B5513-M 03531  
\*13\* G010 G017 G019 G020 G021 G029 G040 G100 G112 G113 G221 G299 H541  
H542 H543 H600 H608 H609 H641 H642 H643 H7 H720 K0 L9 L952 L999 M1  
M111 M112 M119 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222  
M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281 M282 M283  
M320 M414 M510 M520 M532 M533 M540 M782 M903 M904 Q454 R043  
9318-B5514-M 03531  
\*14\* G001 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G029 G111 G112 G450 J0 J012 J2  
J232 M122 M129 M136 M139 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220  
M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M272 M280 M281 M282  
M320 M414 M510 M520 M531 M532 M533 M540 M782 M903 M904 Q454 R043  
9318-B5515-M 03531

Chemical Fragment Codes (M4):

\*01\* C316 D011 D022 D023 D024 D025 D029 D210 G001 G002 G010 G011 G012  
G013 G019 G020 G021 G022 G029 G040 G100 G111 G112 G113 G221 G299  
H100 H102 H103 H141 H321 H341 H342 H343 H381 H382 H383 H401 H402  
H403 H404 H405 H421 H441 H442 H443 H444 H521 H541 H542 H543 H600  
H607 H608 H609 H621 H641 H642 H643 H716 H721 H722 H723 J011 J012  
J013 J014 J111 J131 J132 J133 J211 J231 J232 J561 K130 K130 K199 K351  
K352 K353 K399 K431 K499 K610 K699 K810 K830 K840 K850 K899 L355  
L410 L462 L499 L532 L599 L722 M112 M113 M114 M115 M119 M121 M122  
M124 M129 M143 M149 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221  
M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M273 M280 M281  
M282 M283 M320 M412 M511 M520 M530 M531 M532 M533 M540 M782 M903  
M904 Q454 Q613 R043 9318-B5501-M 03531  
\*02\* F012 F014 F016 F121 F220 G010 G011 G015 G019 G020 G021 G029 G040  
G100 G111 G221 G299 H100 H141 H7 H720 H721 K0 L1 L145 L199 M113 M115  
M119 M123 M133 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222

M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M280 M281 M282 M311 M312  
M321 M332 M342 M344 M372 M391 M413 M510 M521 M530 M531 M532 M540  
M782 M903 M904 Q454 Q613 R043 9318-B5502-M 03531  
**\*03\*** D011 D012 D013 D014 D019 D021 D022 D023 D040 D120 F010 F020 G010  
G020 G021 G040 G100 G221 H100 H102 H103 H141 H181 H201 H521 H600  
H608 H609 H681 H682 H683 H684 H685 H686 H689 J011 J012 J111 J112  
J211 J212 J5 J521 J581 J582 L142 L9 L942 M113 M115 M116 M210 M211  
M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231  
M232 M233 M240 M262 M272 M273 M280 M281 M282 M311 M312 M313 M314  
M315 M316 M320 M321 M331 M332 M333 M334 M340 M342 M343 M344 M353  
M391 M412 M511 M520 M521 M530 M531 M540 M782 M903 M904 Q454 Q613  
R043 9318-B5503-M 03531  
**\*04\*** D010 D019 D020 D029 D040 D049 F010 F019 F020 F021 F029 H600 H608  
H683 M126 M135 M280 M320 M412 M413 M510 M511 M512 M520 M521 M522  
M530 M540 M640 M782 M903 M904 Q454 Q613 R043 9318-B5504-M 03531  
**\*05\*** B634 C108 C216 D014 D025 D120 D320 F012 F013 F014 F015 F016 F121  
F123 F220 G001 G002 G010 G011 G012 G013 G019 G020 G021 G022 G029  
G040 G100 G111 G112 G113 G221 G299 H100 H101 H102 H103 H121 H122  
H123 H141 H142 H143 H321 H322 H323 H341 H342 H343 H401 H402 H403  
H404 H441 H442 H443 H444 H521 H522 H523 H541 H542 H543 H600 H607  
H608 H609 H621 H622 H623 H641 H642 H643 H721 H722 H723 J011 J012  
J013 J014 J111 J112 J113 J131 J132 J133 J211 J212 J231 J232 K0 K431  
K499 L532 L599 L7 L730 L930 L942 L943 L999 M112 M113 M114 M115 M119  
M122 M123 M124 M125 M129 M132 M135 M139 M150 M210 M211 M212 M213  
M214 M215 M216 M220 M221 M222 M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233  
M240 M262 M272 M273 M280 M281 M282 M283 M311 M312 M313 M314 M315  
M316 M320 M321 M322 M323 M331 M332 M333 M334 M340 M342 M411 M412  
M413 M510 M511 M520 M521 M530 M531 M532 M533 M540 M782 M903 M904  
Q454 Q613 R043 9318-B5505-M 03531 00288 08117  
**\*06\*** G020 G023 G430 H4 H401 H402 H403 H441 H442 H443 H481 H600 H641 H8  
J011 J231 J561 M210 M211 M212 M213 M214 M215 M216 M220 M221 M222  
M223 M224 M225 M226 M231 M232 M233 M240 M272 M280 M281 M311 M312  
M313 M314 M315 M316 M320 M321 M331 M332 M333 M340 M342 M373 M391  
M414 M510 M520 M531 M540 M782 M903 M904 Q454 Q613 R043 9318-B5506-M  
03531 00288 08117 05257

Ring Index Numbers: 03531; 00288; 08117; 05257

Generic Compound Numbers: 9318-B5507-M; 9318-B5508-M; 9318-B5509-M;  
9318-B5510-M; 9318-B5511-M; 9318-B5512-M; 9318-B5513-M; 9318-B5514-M;  
9318-B5515-M; 9318-B5501-M; 9318-B5502-M; 9318-B5503-M; 9318-B5504-M;  
9318-B5505-M; 9318-B5506-M

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-78655

(43)公開日 平成5年(1993)3月30日

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

C 0 9 K 11/06  
H 0 5 B 33/14

識別記号 庁内整理番号  
Z 6917-4H  
8815-3K

F I

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数15(全 13 頁)

(21)出願番号 特願平2-340900

(22)出願日 平成2年(1990)11月30日

(31)優先権主張番号 特願平1-318797

(32)優先日 平1(1989)12月11日

(33)優先権主張国 日本 (JP)

(31)優先権主張番号 特願平2-160117

(32)優先日 平2(1990)6月19日

(33)優先権主張国 日本 (JP)

(31)優先権主張番号 特願平1-331066

(32)優先日 平1(1989)12月22日

(33)優先権主張国 日本 (JP)

(71)出願人 99999999

日本電気株式会社

東京都港区芝5丁目7番1号

(72)発明者 宇津木 功二

東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内

(72)発明者 長幡 絵美

東京都港区芝5丁目7番1号 日本電気株式会社内

(74)代理人 弁理士 内原 晋

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 有機薄膜EL素子

(57)【要約】

電子出願以前の出願であるので

要約・選択図及び出願人の識別番号は存在しない。

1

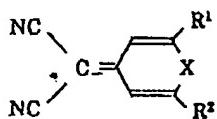
## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一方が透明な一对の電極間に少なく

とも有機発光体薄膜層を有する有機薄膜EL素子において、有機発光体薄膜層の成分が有機電荷輸送性材料と有機発光材料の混合物からなることを特徴とする有機薄膜EL素子。

【請求項2】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

一般式：



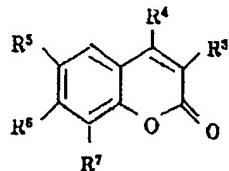
(式中、Xは酸素原子または硫黄原子、R<sup>1</sup>は2-(4-置換もしくは未置換アミノスチリル)基または2-(9-ジエロリジイル)エチニル基、R<sup>2</sup>はアルキル基、ア

リール基または2-(9-ジエロリジイル)エチニル基を示す。)

で示されるピラン誘導体である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項3】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

一般式：



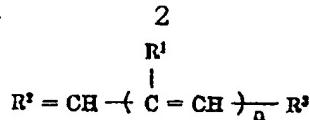
(式中、R<sup>3</sup>は水素原子、カルボキシル基、アルコキシル基、アルコキシカルボニル基、アルカノイル基、シアノ基、アリール基または複素環式芳香族化合物、R<sup>4</sup>は水素原子、アルキル基、ハロアルキル基、カルボキシル基、アルカノイル基またはアルコキシカルボニル基、R<sup>5</sup>は水素原子またはアルキル基、R<sup>6</sup>は置換もしくは未置換のアミノ基、R<sup>7</sup>は水素原子またはアミノ基を含んだR<sup>6</sup>と縮合環を形成してもよい。また、R<sup>3</sup>とR<sup>4</sup>は互いに縮合炭素環状体を形成してもよい。)

で示されるクマリン誘導体またはその塩である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項4】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

一般式：

2



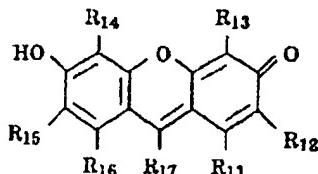
(式中、nは0~3の整数であり、R<sup>1</sup>は水素原子、アルキル基またはハロゲン原子、あるいはR<sup>1</sup>同士でネオペンチレン基を形成してもよく、R<sup>2</sup>およびR<sup>3</sup>は少なくとも窒素原子を含む複素環化合物残基を示し、かつR<sup>2</sup>とR<sup>3</sup>のどちらか一方の複素環に含まれる窒素原子は正の電荷を持っている)

で示されるシアニン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項5】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

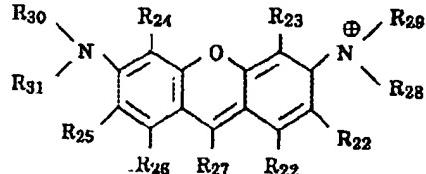
一般式：

(I)



(式中、R<sub>11</sub>~R<sub>17</sub>はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、置換アルキル基、置換アリール基、アリル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、スルホニル基、ニトロ基又はハロゲン原子)または

30 (II)



(式中、R<sub>21</sub>~R<sub>31</sub>はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、

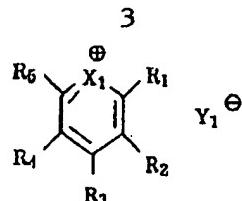
40 置換アルキル基、置換アリール基、アリル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボニル基、カルボキシル基、スルホニル基、ニトロ基又はハロゲン原子)

で示されるキサンテン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項6】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は、

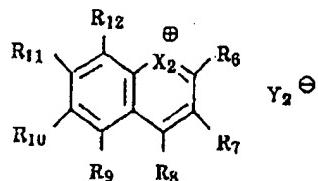
一般式：

(I)



(式中、R<sub>1</sub>～R<sub>5</sub>はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基、置換アルキル基、置換アリール基、置換アラルキル基、アリル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボニル基、カルボ

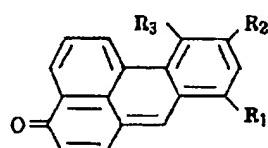
キシル基、スルホニル基、ニトロ基、アミノ基、イミド基又はハロゲン原子)、X<sub>1</sub>は、酸素、硫黄又はセレン、Y<sub>1</sub>は、過塩素酸、スルホン酸、又は、フルオロほう酸、または;



(式中、R<sub>6</sub>～R<sub>12</sub>はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、アラルキル基、置換アルキル基、置換アリール基、置換アラルキル基、アリル基、アルコキシ基、ヒドロキシル基、アルコキシカルボニル基、カルボニル基、スルホニル基、ニトロ基、アミノ基、イミド基又はハロゲン原子、X<sub>2</sub>は、酸素、硫黄又はセレン、

Y<sub>2</sub>は、過塩素酸、スルホン酸、又は、フルオロほう酸で示されるビリリウム系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項7】 有機発光体薄膜層に含まれる有機発光材料は一般式:



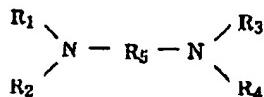
(式中、R<sub>1</sub>は、ヒドロキシル基、アルキル基、ヒドロキシアルキル基、又は、アルコキシカルボニル基、R<sub>2</sub>は、ヒドロキシル基又はハロゲン原子、R<sub>3</sub>は、ヒドロキシル基又は-O- M<sup>+</sup>、ただしMは、ナトリウム、カリウム、リチウム又はアンモ

ニウム)

で示されるオキソベンゾアントラセン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項8】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材

料は一般式:

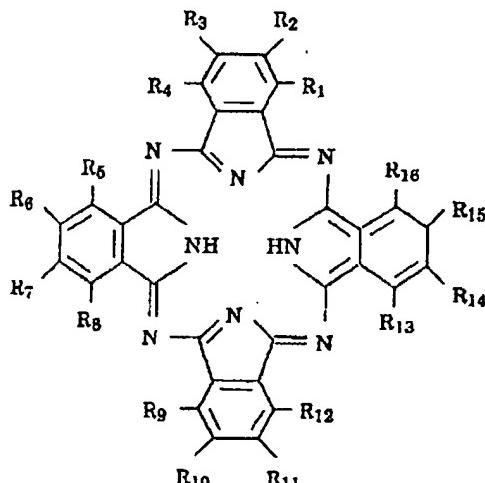


(式中、R<sub>1</sub>～R<sub>4</sub>は同一もしくは異なる基であって、水素原子、アルキル基、アリール基、置換アルキル基、または置換アリール基、R<sub>5</sub>はアルキレン基)で示される第3級ジアミン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項9】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材

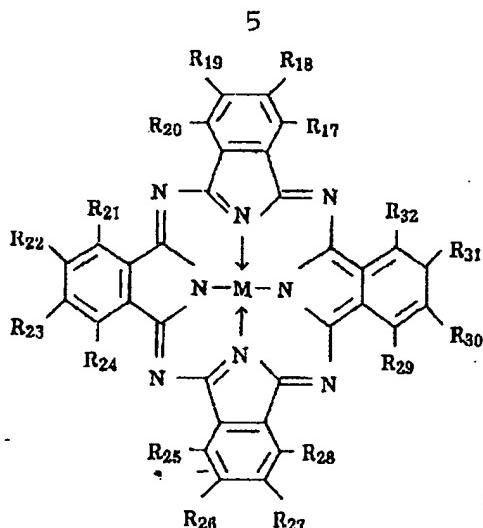
料は一般式:

(I)



(式中、R<sub>1</sub>～R<sub>6</sub>はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、水酸基、フェニル基、アルキル基、又はスルホン酸塩)または、

(II)

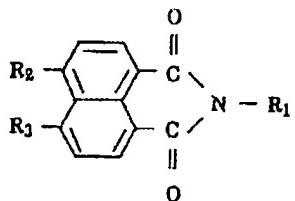


(式中、R<sub>17</sub>～R<sub>32</sub>はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、水素原子、フェニル基、アルキル基、又はスルホン酸塩、Mは金属。)

で示されるフタロシアニン系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項10】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性

材料は一般式：

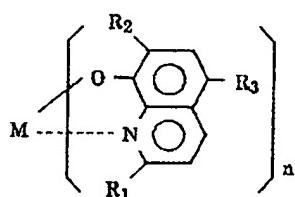


(式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>およびR<sub>3</sub>はそれぞれ同一でも異なつてもよく、水素原子、アルキル基、アリール基、置換アルキル基、置換アリール基、アルコキシル基、フェニル基、置換フェニル基、アミノ基、アシルアミノ基からなる群から選ばれる)で示されるナタルイミド系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項11】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性

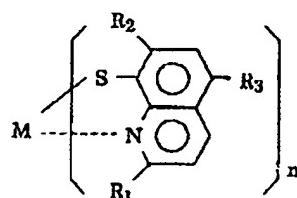
材料は一般式：

(I)



(式中、Mは金属原子、R<sub>1</sub>～R<sub>3</sub>は同一でも相異なつてもよく、水素原子、アルキル基、アルコキシル基またはハロゲン基からなる群から選ばれ、nは1から3の整数である)

または、  
(II)



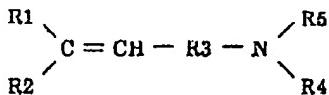
(式中、Mは金属原子、R<sub>1</sub>～R<sub>3</sub>は同一でも相異なつてもよく、水素原子、アルキル基、アルコキ

シル基またはハロゲン基からなる群から選ばれ、nは2または3の整数である)

で示されるキノリノール金属錯体である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項12】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷20 輸送性

材料は一般式、

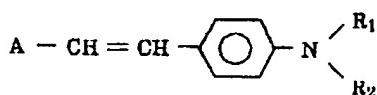


(式中、R<sub>1</sub>は水素原子、フェニル基、置換フェニル基、ナフチル基、置換ナフチル基、R<sub>2</sub>はフェニル基、置換フェニル基、置換アリール基、R<sub>3</sub>はフェニレン基、ナフチレン基、R<sub>4</sub>はアルキル基、フェニル基、置換フェニル基、R<sub>5</sub>はアルキル基、フェニル基、置換フェニル基からなる群から選ばれる。)

で示される第3級アミン誘導体である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項13】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送材

料は一般式、

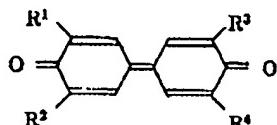


(式中、Aはベンズオキサゾール、ベンゾチアゾール、ナフトチアゾール、インドールおよびキノリンからなる群から選ばれる。また、R<sub>1</sub>とR<sub>2</sub>とフェニル基、置換フェニル基およびアルキル基からなる群から選ばれる。)

で示されるスチリル系化合物である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

50 【請求項14】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷

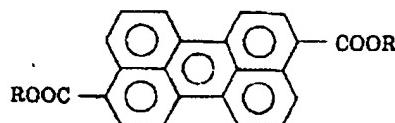
輸送材  
料は一般式、



(式中、R<sup>1</sup>～R<sup>4</sup>はそれぞれ同一もしくは異なる基であって、アルキル基、アリル基、アルコキシル基またはハロゲン原子を示す)で表されるジフェノキノン誘導体である請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【請求項15】 有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送材

料は一般式、



(式中、Rはアルキル基、アルコキシル基、フェニル基および置換フェニル基からなる群から選ばれる。)で示される3,9-ペリレンジカルボン酸エステルである請求項(1)に記載の有機薄膜EL素子。

【発明の詳細な説明】

(産業上の利用分野)

本発明は平面光源やディスプレイに使用される有機薄膜EL素子に関するものである。

(従来の技術)

有機蛍光物質を有機発光体薄膜層としたEL(電界発光)素子は、安価な大面积フルカラー表示素子を実現するものとして注目を集めている(電子情報通信学会技術報告、第89巻、No.106、49ページ、1989年)。報告によると、第5図に示すように強い蛍光を発する有機色素を有機発光体薄膜層54に使用し、青、緑、赤色の明るい発光を得ている。これは、薄膜状で強い蛍光を発し、ピンホール欠陥の少ない有機色素を用いたことで、高輝度なフルカラー表示を実現できたと考えられている。

(発明が解決しようとする課題)

前述の有機色素を用いた有機薄膜EL素子は、青、緑、赤の発光を示す。しかし、従来より知られているように、有機色素の中には溶液状では非常に強い蛍光を示しながら、薄膜状では極端に蛍光が弱くなったり、全く蛍光を示さないものも多くあって、選択できる色素材料の数は限られ、高輝度なフルカラー表示有機薄膜EL素子実現のためにまだ十分ではない。

本発明は以上のべたような従来の事情に対処してなされたもので、これまで薄膜状では蛍光が弱すぎて利用できなかった有機色素を用いることでもできる高輝度なフルカラーの有機薄膜EL素子を提供することを目的とする。

(課題を解決するための手段)

本発明者は、低電圧駆動で高輝度なフルカラーの有機薄膜EL素子を得るべく鋭意研究の結果、有機発光体薄膜層の有機発光材料を有機電荷輸送性材料中に分散させることで濃度消光が防止され、有機色素の選択の幅が広がって特性の優れた有機薄膜EL素子が得られることを見出し、本発明に至った。

すなわち本発明は、少なくとも一方が透明な一对の電極間に少なくとも有機発光体薄膜層を有する有機薄膜EL素子において、有機発光体薄膜層の成分が有機電荷輸送性材料と有機発光材料の混合物からなることを特徴とする有機薄膜EL素子である。

本発明の有機薄膜EL素子としては、第1図のようにガラス基板11上に透明電極12と背面電極15との間に有機発光体薄膜層14のみが形成されたものの他、第2図のように有機正孔注入層23と有機発光体薄膜層24が形成されたもの、第3のように有機発光体薄膜層34と有機電子注入層36が形成されたもの、および第4図のように有機正孔注入層43、有機発光体薄膜層44、有機電子注入層46が形成されあ

30 ものが挙げられる。

なお、透明電極としては通常用いられるものであればいずれでもよく、例えばITO以外にはSnO<sub>2</sub>:Sb、ZnO:AlやAuなどが挙げられる。背面電極にはIn、Mg、Ag、Mg:In、Mg:Agなどが使われる。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項(2)のビラン誘導体の具体的な例としては、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ビラン、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-[2-(9-ジュロリジイル)エチニル]-4H-ビラン、4-(ジシアノメチレン)-2-フェニル-6[2-(9-ジュロリジ

40 イル)エチニル]-4H-ビラン、4-(ジシアノメチレン)-2,6-[2-(9-ジュロリジイル)エチニル]-4H-ビラン、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-[2-(9-ジュロリジイル)エチニル]-4H-チオピランなどがあるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項(3)のクマリン誘導体の具体的な例としては、7-ジ

50 エチルアミノ-4-メチルクマリン、4,6-ジメチル-7-

エチルアミノクマリン、3-(2'-ベンゾチアゾイル)-7-ジエチルアミノクマリン、3-(2'-ベンズイミダゾイル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン、7-アミノ-3-フェニルクマリン、3-(2'-N-メチルベンズイミダゾイル)-7-N,N-ジエチルアミノクマリン、7-ジエチルアミノ-4-トリフルオロメチルクマリン、2,3,5,6-1H,4H-テトラヒドロ-8-メチルキノルアジノ[9,9a,1-gh]クマリン、7-アミノ-4-メチルクマリン、7-ジメチルアミノシクロペンタ[C]クマリン、7-ジメチルアミノ-4-トリフルオロメチルクマリン、1,2,4,5,3H,6H,10H-テロラヒドロ-8-トリフルオロメチル[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジン-10-オン、4-

メチル-7-(スルホメチルアミノ)クマリンナトルム塩、7-エチルアミノ-6-メチル-4-トリフルオロメチルクマリン、7-ジメチルアミノ-4-メチルクマリン、1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ-カルボエトキシ[1]-ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン、9-アセチル-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン、9-シアノ-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン、9-(t-ブトキシカルボニル)-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン、4-メチルビペリジノ[3,2-g]クマリン、4-トリフルオロメチルビペリジノ[3,2-g]クマリン、9-カルボキシ-1,2,4,5,3H,6H,10H-テトラヒドロ[1]ベンゾピラノ[9,9a,1-gh]キノリジノ-10-オン、N-エチル-4-トリフルオロメチルビペリジノ[3,2-g]クマリン、2,3,6,7-テトラヒドロ-11-オキソ-1H,5H,11H-[1]ベンゾピラノ[6,7,8-ij]-キノリジン-10-カルボン酸などがあるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項(4)のシアニン誘導体の具体的な例としては、3,3'-(ジ-n-プロビル)-2,2'-オキサカルボシアニンアイオダイド、3,3'-(ジ-n-ベンチル)-2,2'-オキサカルボシアニンアイオダイド、3,3'-(ジ-n-ヘキシル)-2,2'-オキサカルボシアニンアイオダイド、3,3'-(ジ-n-プロビル)-2,2'-オキサカルボシアニンアイオダイド、3,3'-(ジ-n-プロビル)-2,2'-チアジカルボシアニンアイオダイド、1-カルボキシエチル-3'-エチル-4,2'-キノチアジカルボシアニンアイオダイド、1-1'-ジエチル-3,3',3'-テトラメチル-2,2'-インドトリカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-オキサシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-チアシアニンアイオダイド、1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチル-2,2'-インドシアニンバークロレート、1,3'-ジエチル-2,2'-キノ-チアシアニンアイオダイド、1,3'-ジエチル-2,2'-キノ-セレナシアニンアイオダイド、1,1'-ジ

エチル-2,2'-キノシアニンアイオダイド、1,1'-ジエチル-2,4'-キノシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-チアジリノカルボシアニンアイオダイド、

3,3'-ジエチル-2,2'-オキサカルボシアニンアイオダイド、3,3,9'-トリエチル-5,5'-ジフェニル-2,2'-オキサカルボシアニンアイオダイド、1,3,1',3'-テトラエチル-5,6,5',6'-テトラクロロ-2,2'-イミダカルボシ

10 アニンアイオダイド、1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチル-2,2'-インドカルボシアニンアイオダイド、3,3',9'-トリエチル-2,2'-チアカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-9-メチル-チアカルボシアニンアイオダイド、アンハイドロ-3,3'-ジスルホプロビル-9-メチルセレナカルボシアニンハイドロキサイドトリエチルアミン塩、3,3'-ジエチル-4,4'-ジメチル-2,2'-チアゾロカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-チアカルボシアニンアイオダイド、アンハイドロ-3,3'-ジスルホプロビルチアカルボシア

20 ニンハイドロキサイドトリエチルアミン塩、3,3'-ジエチル-2,2'-セレナカルボシアニンアイオダイド、アンハイドロ-3,3'-ジスルホプロビル-9-メチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベンゾ)チアカルボシアニンハイドロキサイドトリエチルアミン塩、3,3'-ジエチル-9-メチル-2,2'-(6,7,6',7'-ジベンゾ)チアカルボシアニ

ンアイオダイド、3,3',9-トリエチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベンゾ)チアカルボシアニンプロマイド、1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベンゾ)-

30 インドカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-(6,7,6',7'-ジベンゾ)チアカルボシアニンアイオダイド、1,3'-ジエチル-4,2'-キノキサカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベンゾ)チアカルボシアニンアイオダイド、1,1'-ジエチル-2,2'-キノカルボシアニンアイオダイド、1,1'-ジエチル-4,4'-キノカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-オキサジカルボシアニンアイオダイド、1,3,3,1',2',3'-オキサメチル-2,2'-インドジカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-チアジカルボシアニンアイオダイド、1,3'-ジエチル-4,2'-キノチアカルボシアニンアイオダイド、1,1'-ジエチル-2,4'-キノカルボシアニンアイオダイド、1,1'-ジエチル-4,4'-キノカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-チアジカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-セレナジカルボシアニンアイオダイド、1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベン

ゾ)インドジカルボシアニンバークロレート、3,3'-ジエチル-2,2'-(6,7,6',7'-ジベンゾ)チアジカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-9,11-ネオペンチレン-2,2'-チアジカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-セレナジカルボシアニンアイオダイド、1,3,3,1',3',3'-ヘキサメチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベン

50 ゾ)インドジカルボシアニンバーカロレート、3,3'-ジエチル-2,2'-(6,7,6',7'-ジベンゾ)チアジカルボシアニンアイオダイド、3,3'-ジエチル-2,2'-(4,5,4',5'-ジベン

1 1

5'-ジベンゾ)チアジカルボシアニンアイオダイド、  
1,1'-ジエチル-11-クロロ-2,2'-キノジカルボシアニ  
ンプロマイド、1,1'-ジエチル-2,2'-キノジカルボシ  
アニンアイオダイド、1,1'-ジエチル-11-クロロ-4,4'-  
キノジカルボシアニンアイオダイド、1,1'-ジエチ  
ル-4,4'-キノジカルボシアニンアイオダイドなどが  
あるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項(5)のキサンテン系色素の具体的な例としては、9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オン、9-(2'-カルボキシフェニル)-2,7ジクロロ-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オン、2,4,5,7-テトラプロモ-9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、4,5-ジプロモ-9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、4,5-ジヨード-9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、2,4,5,7-テトラプロモ-3',4',5',6'-テトラクロロ-9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、2,4,5,7-テトラヨード-9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、2,4,5,7-テトラヨード-3',4',5',6'-テトラクロロ-9-(2'-カルボキシフェニル)-6-ヒドロキシ-3H-キサンテン-3-オンジナトリウム塩、2-(6-アミノ-3-イミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッドヒドロクロリド、メチル-2,6-アミノ-3-イミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリド、エチル-2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリド、エチル-2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-2,7ジメチル-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリド、2-(6-メチルアミノ-3-メチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッドバークロレート、2-(6-ジメチルアミノ-3-ジエチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッドヒドロクロリド、2-(6-ジメチルアミノ-3-ジメチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッドバークロレート、エチル-(6-エチルアミノ-3-ジエチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリド、2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-2,7ジメチル-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッドバークロレート、エチル-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-2,7ジメチル-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートバークロレート、2-(6-アセチルアミノ-3-アセチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾイックアシッド、8-(2,4-ジスホニル)-2,3,5,6,11,2,14,15-1H,4H,10H,13H-オクタヒドロジキノリジン[9,

12

9a,1-bc;9,9a,1-hi]キサンテリウムヒドロクロリド、スルホローダミンB、[9-(0-カルボキシフェニル)-6-(ジエチルアミノ)-3H-キサンテン-3-イリデン]ジエチルアンモニウムクロリド、等あるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項(6)のピリリウム系色素の具体的な例としては、2-(3',4'-ジヒドロキシフェニル)-3,5,7-トリヒドロキシ-1-ベンゾピリリウムバークロレート、7-ヒドロ

10

キシ-2-[3-(7-ヒドロキシ-2H-1-ベンゾピラン-2-イリデン)-1-プロペニル]-1-ベンゾピリリウムパークロレート、2-フェニル-4-[2-[4-[2-[(2-メチル-1-オキソ-2-プロペニル)オキシ]エトシキシ]フェニル]-エテニル]-1-ベンゾピリリウムパークロレート、2,4,6-トルフェニルチオピリリウムパークロレート、2,6-ジフェニル-4-(4-メチルフェニル)チオピリリウムパークロレート、2,6-ビス(4-メチルフェニル)-4-(フェニルチオピリリウム)パークロレート、2,6-ジフェニル-4-(4-メトキシフェニル)チオピリリウムパークロレート、2,6-ジフェニル-4-[4-(2-ヒドロキシエトキシ)フェニル]チオピリリウムパークロレート、2,6-ビス(4-メトキシフェニル)-4-フェニルチオピリリウムパークロレート、2,6-ジフェニル-4-[(3-メチル-2-ベンゾオキサゾリニルイデン)メチル]チオピリリウムパークロレート、2,6-ジフェニル-4-[(3-メチル-2-ベンゾチアゾリニルイデン)メチル]チオピリリウムパークロレート、2,6-ジフェニル-4-[3-(1,3,3-トリメチル-2,3-ジヒドロ-1H-インドール-2-イリデン)-1-プロペニル]チオピリリウムパークロレート、2,6-

ジフェニル-4-[3-(1,3,3-トリメチル-2,3-ジヒドロ-1H-インドール-2-イリデン)-1-プロペニル]セレナビリリウムバークロレート、4-(1'-ベンゾチオビラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-1-ベンゾチオビリリウム

ムパークロレート、4-(4'-ジメチル-1'-ベンゾチオピラン-2'-イリデンメチル)-1-ベンゾチオビリリウムパークロレート、4-(4'6'-ジメチル-1'-ベンゾチオピラン-2'-イリデンメチル)-6-メチル-1-ベンゾチオビリリウムパークロレート、4-(4'-メトキシ-1'-ベンゾチオピラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-1-ベンゾチオビリリウムパークロレート、4-(4'-メチル-7'-メトキシ-1'-ベンゾピラン-2'-イリデンメチル)-7-メトキシ-1-ベンゾチオビリリウムパークロレート、4-(4'-メチル-7'-メトキシ-1'-ベンゾピラン-2'-イリデンメチル)-2-メチルチオ-7-メトキシ-1-ベンゾピリリウムパークロレート、4-(4'7'-ジメトキシ-1'-ベンゾチオピラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-7-メトキシ-1-ベンゾチオビリリウムパークロレート、4-

13

(4'-メトキシ-7'-クロロ-1'-ベンゾチオビラン-2'-イリデンメチル)-2-メチル-7-クロロ-1-ベンゾピリリウム

パークロレート、4-(4'-ジメチルアミノフェニル)-2-(4-メトキシフェニル-6-フェニルピリリウムパークロレート、4,6-ジエニル-2-(4-エトキシフェニル)チオピリリウムパラ-トルエンスルホネート、2-(4-メトキシフェニル)-6-フェニル-4-(パラ-トリル)-ピリリウムテトラフルオロボレート等があるがこの限りではない。

本発明の有機発光材料として用いられる請求項(7)のオキソベンゾアントラセンの具体的な例としては、4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ[d,e]アントラセンナトリウム、4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン12-オラート、13-クロル-4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン、ナトリウム、13-クロル-4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン、13-クロル-4-オキソ-10-メチル-12-N-メチル-N-フェニルカルバミルオキシ)-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン、4-オキソ-10-メチル-12-ビロリジニル-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン、10-ブトキシカルボニル-4-オキソ-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン、ナトリウム10-ブトキシカルボニル-4-オキソ-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン12-オラート、ナトリウム、12-ブトキシカルボニル-13-クロロ4H-オキソ-4H-ベンゾ[d,e]アントラセン12-オラートなどがあるがこの限りではない。

また、本発明の有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(8)の第3級ジアミン系化合物の具体的な例としては、1,1-ビス(4-ジ-パラ-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン、1,1-ビス(4-ジ-パラ-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン、N,N,N',N'-テトラ-パラ-トリル-4,4'-ジアミノビフェニル、N,N,N',N'-テトラフェニル-4,4'-ジアミノビフェニル、4-(ジ-パラ-トリルアミノ)-4'-[4-(ジ-パラ-トリルアミノ)-スチリル]ス

チルベン、ビス(4-ジメチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン、4,4'-ビス(ビフェニルアミノ)クワドリフェニル、等があるがこの限りではない。

本発明の有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(9)のフタロシアニン化合物の具体的な例としては、フタロシアニン、マグネシウムフタロシアニン、クロムフタ

ロシアニン、鉄フタロシアニン、亜鉛フタロシアニン、ニッケルフタロシアニン、銅フタロシアニン、ガリウムフタロシアニン、鉛フタロシアニン、ヘキサデカヒドロフタロシアニン、マグネシ

14

ウムヘキサデカヒドロフタロシアニン、ニッケルヘキサデカヒドロフタロシアニン、コバルトヘキサデカヒドロフタロシアニン、銅ヘキサデカヒドロフタロシアニン、テトラフェニルフタロシアニン、マンガンテトラフェニルフタロシアニン、コバルトテトラフェニルフタロシアニン、鉛テトラフェニルフタロシアニン、スズテトラフェニルフタロシアニン、パラジウムテトラフェニルフタロシアニン、テトラキス-タ-シャリ-ブチルフタロシアニン、フタロシアニンスルボン酸ナトリウム塩等があるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(10)のナフタルイミド系化合物の具体的な例としては、N-メチル-4-アミノナフタルイミド、N-エチル-4-アミノナフタルイミド、N-プロピル-4-アミノナフタルイミド、N-n-ブ

チル-4-アミノナフタルイミド、4-アセチルアミノナフタルイミド、N-メチル-4-アセチルアミノナフタルイミド、N-エチル-4-アセチルアミノナフタルイミド、N-プロピル-4-アセチルアミノナフタルイミド、N-n-ブチル-4-アセチルアミノナフタルイミド、N-メチル-4-メトキシナフタルイミド、N-エチル-4-メトキシナフタルイミド、N-プロピル-4-メトキシナフタルイミド、N-n-ブチル-4-メトキシナフタルイミド、N-メチル-4-エトキシナフタルイミド、N-エチル-4-エトキシナフタルイミド、N-プロピル-4-エトキシナフタルイミド、N-n-ブチル-4-エトキシナフタルイミド、4-アミノナフタルイミド、

30 N-(2,4-キシリル)-4-アミノナフタルイミドなどがあるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(11)のキノリノール金属錯体の具体的な例としては、トリス(8-ヒドロキシキノリノール)アルミニウム、ビス(8-キノリノール)マグネシウム、トリス(8-キノリノール)インジウム、ビス(ベンゾ(f)-8-キノリノール)亜鉛、トリス(5-

40 メチル-8-キノリノール)アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム、ビス(5-クロロ-8-キノリノール)カリシウムなどがあるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(12)の第3級アミン誘導体の具体的な例としては、4,4'-ジメチル-4''-(2,2-ジフェニル)ビニル)トリフェニルアミン、4,4'-ジメトキシ-4''-(2-(1-ナフェチル)ビニル)トリフェニルアミン、N,N-ジフェニル-4-( $\alpha$ -スチリル)-1-ナフチルアミン、4,4'-ジメチル-4''-(2-(4-クロロフェニル)ビニル)

50

15

トリフェニルアミン、9-(2-(4-N,N-ジエチルアミノ)フェニル)ビニル)アントラセンなどがあるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(13)のスチリル系化合物の具体的な例としては、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)ナフト[1,2-d]チアゾール、2-(p-ジメチルアミノスチリル)ナフト[1,2-d]チアゾール、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)ベンズオキサゾール、2-

(p-ジメチルアミノスチリル)ベンズオキサゾール、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)ベンズオキサゾール、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)キノリン、2-(p-ジメチルアミノスチリル)キノリン、4-(p-ジフェニルアミノスチリル)キノリン、4-(p-ジメチルアミノスチリル)キノリン、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)ベンゾチアゾール、2-(p-ジフェニルアミノスチリル)-3,3-ジメチル-3H-インドール、2-(p-ジメチルアミノスチリル)-3,3-ジメチル-3H-インドールなどがあるがこの限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(14)のジフェノキノン誘導体の具体的な例としては、2,6-ジメチル-2',6'-ジ-t-ブチルジフェノキノン、2,2',6,6'-テトラ-t-ブチルジフェノキノン、2,2',6,6'-テトラメチルジフェノキノンなどがあるが、この限りではない。

有機発光体薄膜層に含まれる有機電荷輸送性材料として用いられる請求項(15)の3,9-ペリレンジカルボン酸エステルの具体的な例として3,9-ペリレンジカルボン酸ジフェニルエステル、3,9-ペリレンジ

カルボン酸ジメチルエステル、3,9-ペリレンジカルボン酸-ジ-(p-ジメトキシフェニル)エステル、3,9-ペリレンジカルボン酸-ジ-(o-ジメトキシフェニル)エステル、3,9-ペリレンジカルボン酸-ジ-(p-ジメトキシフェニル)エステル、3,9-ペリレンジカルボン酸-ジ-(p-ジメチルアミノフェニル)エステル、3,9-ペリレンジカルボン酸-ジ-(p-ジエチルアミノフェニル)エステルなどがあるがこの限りではない。

(実施例)

以下、本発明の実施例について詳細に説明する。

(実施例1)

有機発光体薄膜層の有機発光材料として2,3,6,7-テトラヒドロ-11-オキソ-1H,5H,11H-(1)ベンゾピラノ[6,7,8-ij]-キノリジン-10-カルボン酸を用い、有機電荷輸送性材料として1,1-ビス-(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用いた。第1図に示すように、ガラス基板11上にITO透明電極12を形成してから、上記の有機発光材料が有機

発光体薄膜層中に5モル%含まれるように有機電荷

輸送性材料とともに10<sup>-7</sup>Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層14を1000Å形成した。最後に背面金属電極15としてInを電子ビーム蒸着法で1500Å形成して有機薄膜EL素子を作製した。

この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約7Vの直流電圧の印加で約500cd/m<sup>2</sup>の明るい青緑色発光が得られた。従来の素子に比べ、発

10 光輝度・効率が1.5から2倍改善されている。この有機薄膜EL素子を電流密度0.5mA/cm<sup>2</sup>の状態でエーリング試験をしたところ、輝度半減時間は300時間以上であった。従来の素子では100から300時間であった。

(実施例2)

有機発光体薄膜層の発光材料として4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製し、約200cd/m<sup>2</sup>の明るい橙色発光が得られた。

20 (実施例3)

有機発光体薄膜層の発光材料として1,1'-ジエチル-2,2'-キノシアニンアイオダイドを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製した。約7Vの直流電圧の印加で約100cd/m<sup>2</sup>の明るい黄色発光が得られた。この素子を電流密度0.5mA/cm<sup>2</sup>の状態でエーリング試験をしたところ輝度半減時間は約300時間であった。

30 (実施例4)

有機発光体薄膜層の発光材料として、3,3'-ジエチル-2,2'-チアカルボシアニンアイオダイドを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製し、約150cd/m<sup>2</sup>の明るい黄色発光が得られた。

(実施例5)

有機発光体薄膜層14の有機発光材料として、2-(6-ジエチルアミノ-3-ジエチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)-ベンゾイックアシッドヒドロクロリドを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製した。

40 この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約10Vの直流電圧の印加で約120cd/m<sup>2</sup>の明るい黄色発光が得られた。従来の素子に比で発光輝度・効率が約1.2倍改善されている。

(実施例6)

有機発光体薄膜層の発光材料として、エチル-2-(6-エチルアミノ-3-エチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)ベンゾエートヒドロクロリドを用いた以外は実施例1と同様にして素子を作製し、約15Vの直

17

電圧の印加で約100cd/m<sup>2</sup>の明るい黄色発光が得られた。

## (実施例7)

有機発光体薄膜層14の有機発光材料として、2-13', 4'-ジヒドロキシフェニル)-3,5,7-トリヒドロキシ-1-ベンゾピリリウムパークロレートを用いた。第1図に示すようにガラス基板11にITO透明電極12を形成してから上記の有機発光材料が有機発光体薄膜層中に5モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10<sup>-7</sup>Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層14を1000Å形成した。最後に背面金属電極15として、Inを電子ビーム蒸着法で1500Å形成して有機薄膜EL素子を作製した。この素子の発光特性を

乾燥窒素中で測定したところ約10Vの直流電圧の印加で約120cd/m<sup>2</sup>の明るい赤色発光が得られた。

## (実施例8)

有機発光体薄膜層14の有機発光材料として、4-オキソ-10-メチル-4H-ベンゾ[d,e]アントラセンを用いた。これ以外は、実施例7と同様にして有機薄膜EL素子を作製した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ約10Vの直流電圧の印加で約120cd/m<sup>2</sup>の明るい発光が得られた。発光が得られた。

## (実施例9)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料として、無金属フタロシアニンを用い、有機発光材料として、2-(6-ジメチルアミノ-3-ジエチルイミノ-3H-キサンテン-9-イル)-ベンゾイックアシッドヒドロクロリドを用いた。

第1図に示すように、ガラス基板11にITO透明電極12を形成してから、上記の有機発光材料が有機発光体薄膜層中に5モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10<sup>-7</sup>Torrの真空中で共蒸着し

て有機発光体薄膜層14を1000Å形成した。最後に背面金属電極15として、Inを電子ビーム蒸着法で1500Å形成して有機薄膜EL素子を作製した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ約10Vの直流電圧の印加で約120cd/m<sup>2</sup>の明るい黄色発光が得られた。従来の素子に比べ発光輝度・効率が約1.2倍改善されている。

## (実施例10)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料として、コバルトフタロシアニンを用いた以外は実施例9と同様にして素子を作製し、約15Vの直流電圧の印加で約100cd/m<sup>2</sup>の明るい黄色発光が得られた。

## (実施例11)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料とし

18

て4-(ジーパラートリルアミノ-4') [4-(ジーパラートリルアミノ)スチリル] スチルベンを用い有機発光材料として4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ビランを用いた。第1図に示すようにガラス基板11にITO透明電極12を形成して

から上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10<sup>-7</sup>Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層

10 14を1000Å形成した。最後に背面電極15としてInを電子ビーム蒸着法で1500Å形成して有機薄膜EL素子を作製した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ約15Vの直流電圧の印加で約100cd/m<sup>2</sup>の明るい橙色発光が得られた。

## (実施例12)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料としてN-(2,4-キシリル)-4-アミノナフタルイミドを用い、有機発光材料として4-(ジシアノミチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ビランを用

20 いた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明電極22を形成してから、正孔注入層として、1,1-ビス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い10<sup>-7</sup>Torrの真空蒸着で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10<sup>-7</sup>Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を

700Å形成した。最後に背面電極25としてMgIn合金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素

30 子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約13Vの直流電圧の印加で約100cd/m<sup>2</sup>の橙色発光が得られた。

## (実施例13)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料としてトリス(8-ヒドロキシキノリノール)アルミニウムを用い、有機発光材料として、2,3,6,7-テトラヒドロ-9-メチル-11-オキソ-1H,5H,11H-(1)ベンゾピラノ[6,7,8-ij]-キノリジンをもちいた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明電極22を形成してか

40 ら、正孔注入層として1,1-ビス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い10<sup>-7</sup>Torrの真空蒸着で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに10<sup>-7</sup>Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を500Å形成した。最後に、背面電極25としてMgIn合金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素子を作成した。この素

子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約

50 20Vの直流電圧の印加で約80cd/m<sup>2</sup>の青色の発光が

得られた。

(実施例14)

有機発光体薄膜層14の有機電荷輸送性材料として2-(p-ジメチルアミノスチリル)-3,3-ジメチル-3-イソドールを用い、有機発光材料として、-4(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランをもちいた。第3図に示すようにガラス基板31にITO透明電極23を形成してから、上記の有機発光材料を有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに $10^{-7}$ Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層34を500Å形成した。次に有機電子注入層36として2-(4'-tert-ブチルフェニル)-5-(4"-ビフェニル)-1,3,4-オキサジアゾールを用い、 $10^{-6}$ Torrの真空中で300Å蒸着した。最後に、背面電極35としてMgIn合金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定し

たところ、約18Vの直流電圧の印加で約100cd/m<sup>2</sup>の橙色の発光が得られた。

(実施例15)

有機発光体薄膜層の有機電荷輸送性材料として4,4'-ジメチル-(4"(2,2-ジフェニル)ビニル)トリフェニルアミンを用い、有機発光材料として、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4H-ピランをもちいた。第4図に示すようにガラス基板41にITO透明電極42を形成してから、正孔注入層43として1,1-ビス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い、 $10^{-7}$ Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層44を500Å形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに $10^{-7}$ Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を500Å形成した。最後に、背面電極35としてMgIn合金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素子を作成した。この素子の発光

特性を乾燥窒素中で測定したところ、約20Vの直流電圧の印加で約100cd/m<sup>2</sup>の橙色の発光が得られた。

(実施例16)

有機発光体薄膜層の有機電荷輸送性材料として2,6-ジメチル-2',6'-ジ-t-ブチルジフェニキノンを用い、有機発光材料として、N,N-(ジ-1,4-t-ブチル)3,

4,9,10-ペリレンテトラカルボキシルイミドを用いた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明電極22を形成してから、正孔注入層23として1,1-ビス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い、 $10^{-7}$ Torrの真空蒸着で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに $10^{-7}$ Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を700Å形成した。最後に、背面電極25としてMgIn合

10 金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約15Vの直流電圧の印加で約50cd/m<sup>2</sup>の赤色の発光が得られた。

(実施例17)

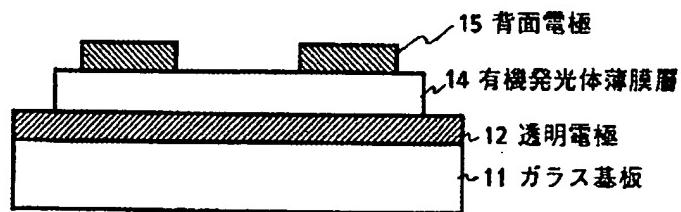
有機発光体薄膜層の有機電荷輸送性材料として3,9-ペリレンジカルボン酸ジフェニルエステルを用い、有機発光材料として、4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチル)-4H-ピランを用いた。第2図に示すようにガラス基板21にITO透明電極22を形成してから、正孔注入層23として1,1-ビス(4-N,N-ジトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを用い、 $10^{-7}$ Torrの真空蒸着で形成した。次に上記の有機発光材料が有機発光体薄膜中に1モル%含まれるように有機電荷輸送性材料とともに $10^{-7}$ Torrの真空中で共蒸着して有機発光体薄膜層24を500Å形成した。最後に、背面電極25としてMgIn合金(In10at%)を電子ビーム蒸着で1500Å形成して、素子を作成した。この素子の発光特性を乾燥窒素中で測定したところ、約20Vの直流電圧の印加で約120cd/m<sup>2</sup>の赤色の発光が得られた。

(発明の効果)

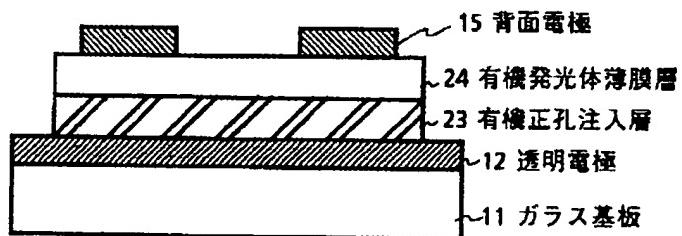
以上説明したように本発明により、青から赤に至る高輝度な有機薄膜EL素子のフルカラー化を実現でき、低電圧駆動の薄膜発光体としてきわめて有効であり、その工業的価値は高い。

【図面の簡単な説明】

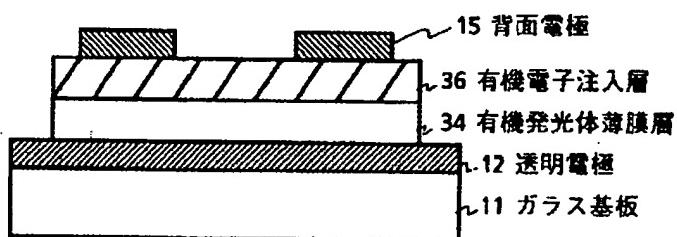
第1図から第4図は本発明の実施例に用いた有機薄膜EL素子の概略断面図、第5図は従来より知られている有機薄膜EL素子の概略断面図である。  
11,51…ガラス基板、12,25…ITO透明電極、23,43,53…有機正孔注入層、14,24,34,44,54…有機発光体薄膜層、15,55…背面電極、36,46…有機電子注入層



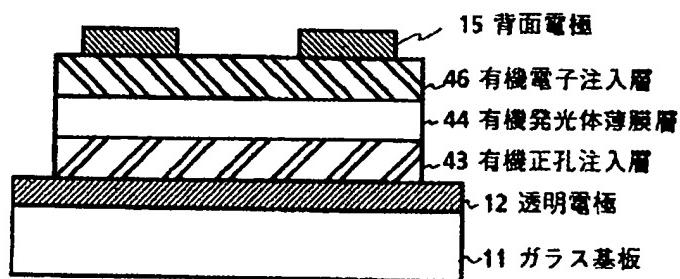
第1図



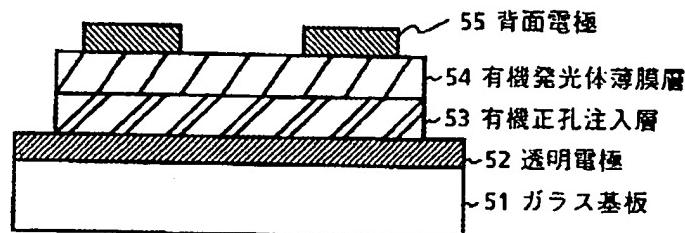
第2図



第3図



第4図



第5図

## フロントページの続き

(31) 優先権主張番号 特願平2-306556

(32) 優先日 平2(1990)11月13日

(33) 優先権主張国 日本(JP)

(31) 優先権主張番号 特願平2-279183

(32) 優先日 平2(1990)10月19日

(33) 優先権主張国 日本(JP)

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**